



Docket No.: ION-0221

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:
Hiroyuki Okuhira et al.

Application No.: 10/748,281

Confirmation No.: 6605

Filed: December 31, 2003

Art Unit: 1712

For: CURABLE RESIN COMPOSITION

Examiner: Not Yet Assigned

CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS

MS Missing Parts
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
Japan	2003-000459	January 6, 2003

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is filed herewith.

Dated: May 4, 2004

Respectfully submitted,

By 

David T. Nikaido

Registration No.: 22,663

Carl Schaukowitch

Registration No.: 29,211

RADER, FISHMAN & GRAUER PLLC

1233 20th Street, N.W., Suite 501

Washington, DC 20036

(202) 955-3750

Attorneys for Applicant

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 1 月 6 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 0 0 0 4 5 9
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 3 - 0 0 0 4 5 9]

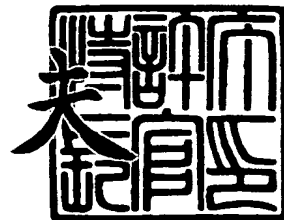
出 願 人 横 浜 ゴ ム 株 式 会 社
Applicant(s):



2 0 0 3 年 1 2 月 2 4 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 1 0 6 9 5 5

【書類名】 特許願

【整理番号】 P2002370

【提出日】 平成15年 1月 6日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C08G 18/77
C08G 18/24
C09J175/04

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県平塚市追分 2 番 1 号 横浜ゴム株式会社 平塚
製造所内

【氏名】 奥平 浩之

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県平塚市追分 2 番 1 号 横浜ゴム株式会社 平塚
製造所内

【氏名】 兼政 昭仁

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県平塚市追分 2 番 1 号 横浜ゴム株式会社 平塚
製造所内

【氏名】 細田 浩之

【特許出願人】

【識別番号】 000006714

【氏名又は名称】 横浜ゴム株式会社

【代理人】

【識別番号】 100080159

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡辺 望稔

【電話番号】 3864-4498

【選任した代理人】

【識別番号】 100090217

【弁理士】

【氏名又は名称】 三和 晴子

【電話番号】 3864-4498

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 006910

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9710081

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 硬化性樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

1 分子内にイソシアネート基とアルコキシシリル基とを有し、重量平均分子量が 500 以上であるシリル基変性ウレタンプレポリマーを含有する第 1 液と、硬化剤を含む第 2 液とからなる二液型の硬化性樹脂組成物。

【請求項 2】

前記シリル基変性ウレタンプレポリマーが、分子内に 2 個以上のイソシアネート基を有するポリイソシアネート化合物と；分子内に 1 級または 2 級のアミノ基とアルコキシシリル基を有するシラン化合物と；

を反応させて得られる反応生成物である請求項 1 に記載の硬化性樹脂組成物。

【請求項 3】

前記シリル基変性ウレタンプレポリマーまたは前記ポリイソシアネート化合物のイソシアネート基が、2 級または 3 級の炭素原子に結合している請求項 1 または 2 に記載の硬化性樹脂組成物。

【請求項 4】

前記第 1 液が、さらに、エポキシ樹脂を含有する請求項 1～3 のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

【請求項 5】

前記第 2 液が、硬化剤としてポリアミン化合物を含有する請求項 1～4 のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

【請求項 6】

前記第 2 液が、硬化剤として、さらに、アルコキシシリル基縮合触媒を含有する請求項 5 に記載の硬化性樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、接着剤、シーリング剤等に用いられる二液型の硬化性樹脂組成物に関する。より詳しくは、十分な可使用時間を確保でき硬化性に優れる二液型の硬化性樹脂組成物に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

ポリイソシアネート化合物は、アミン等の硬化剤との反応により三次元架橋構造を形成し、高強度、高伸度、耐摩耗性、耐脂性等に優れたポリウレタン硬化物を与えるため、目地材、シーラント、接着剤等の主要成分として利用されている。

このポリイソシアネート化合物のイソシアネート基は一般に反応性が高く、アミン等の硬化剤を混合されると、これらと直ちに反応してしまう。このためポリイソシアネート化合物と該硬化剤との混合物（組成物）は使用前にゲル化または硬化し実用上大きな問題となっている。

この問題を解決する技術として、反応性の低いアミンまたは特定の条件でアミン等を発生する潜在性硬化剤を用いる一液型組成物および二液型組成物等が多数提案されている（例えば、特許文献 1、2 参照。）。

【 0 0 0 3 】

例えば、該潜在性硬化剤と、ウレタンプレポリマー（ポリイソシアネート化合物）等の樹脂成分を含む主剤とからなる二液型の硬化性樹脂組成物においては、該潜在性硬化剤の特性により、上記ゲル化または硬化の問題をある程度解決することができる。

しかし、上記硬化剤と主剤を混合した後の組成物は、最終的にはこれら硬化剤と主剤を含有した一液型組成物と同じ組成となり、またそれら組成物の硬化方法も同じであるため、上記二液型組成物も一液型組成物と同様の問題を有する。すなわち、上記二液型組成物においても、一液型組成物と同様に硬化反応は通常、湿気に触れる該組成物の表面から起こるため、該表面は硬化性に優れるものの、湿気に触れない組成物の深部（内部）は硬化反応が起こりにくく硬化性に劣るという問題が生じる（例えば、特許文献 3 参照。）。

【 0 0 0 4 】

ところで、組成物および硬化物の機械的特性（引っ張り強度、破断強度、破断伸び等）、接着性等を向上させる目的で、主剤の樹脂成分にエポキシ樹脂を含有させる方法が知られているが、硬化剤として湿気により活性化するケチミン化合物を用いる場合には、やはり、上記と同様の問題がある（例えば、特許文献 4 参照。）。

【 0 0 0 5 】**【特許文献 1】**

特開平 1 0 - 1 8 3 0 5 8 号公報

【特許文献 2】

特開平 9 - 1 6 9 8 2 9 号公報

【特許文献 3】

特開平 1 1 - 3 2 2 8 9 4 号公報

【特許文献 4】

特開 2 0 0 2 - 3 7 8 4 1 号公報

【 0 0 0 6 】**【発明が解決しようとする課題】**

このように、樹脂成分を含む第 1 液と硬化剤を含む第 2 液とからなる二液型のウレタン系硬化性樹脂組成物において、第 1 液と第 2 液を混合した後にゲル化または硬化せずに使用できる時間（接着剤として用いる場合には組成物調製後張り合わせ可能な時間、本発明において「可使時間」という。）の確保と、優れた硬化性（特に深部硬化性）の獲得とは相反する性質であり、これらの性質を高い水準で両立できる硬化性樹脂組成物は知られていない。

【 0 0 0 7 】

すなわち、本発明は、十分な可使時間を確保でき、かつ、硬化性、特に深部硬化性に優れる二液型の硬化性樹脂組成物を提供することを目的とする。

【 0 0 0 8 】**【課題を解決するための手段】**

本発明者らは、上記課題に対して鋭意検討した結果、樹脂成分としてウレタンプレポリマーに含まれるイソシアネート基の一部をアルコキシシリル基で変性す

ることにより、硬化剤と残存するイソシアネート基の反応による硬化性を損なわず、また該反応およびアルコキシシリル基の縮合反応に由来する 3 次元架橋反応が緩やかに進行し組成物調製後（二液混合後）に直ちにゲル化または硬化することを抑制でき可使時間を確保できることを知見した。

本発明者らは、上記知見を基に本発明を完成させた。

【0009】

すなわち、本発明は、以下の（１）～（６）を提供する。

（１）１分子内にイソシアネート基とアルコキシシリル基とを有し、重量平均分子量が 500 以上であるシリル基変性ウレタンプレポリマーを含有する第 1 液と、硬化剤を含む第 2 液とからなる二液型の硬化性樹脂組成物。

【0010】

（２）前記シリル基変性ウレタンプレポリマーが、分子内に 2 個以上のイソシアネート基を有するポリイソシアネート化合物と；分子内に 1 級または 2 級のアミノ基とアルコキシシリル基を有するシラン化合物とを反応させて得られる反応生成物である上記（１）に記載の硬化性樹脂組成物。

【0011】

（３）前記シリル基変性ウレタンプレポリマーのイソシアネート基が、2 級または 3 級の炭素原子に結合している上記（１）に記載の硬化性樹脂組成物、あるいは、前記ポリイソシアネート化合物のイソシアネート基が、2 級または 3 級の炭素原子に結合している上記（２）に記載の硬化性樹脂組成物。

【0012】

（４）前記第 1 液が、さらに、エポキシ樹脂を含有する上記（１）～（３）のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

【0013】

（５）前記第 2 液が、硬化剤としてポリアミン化合物を含有する上記（１）～（４）のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

【0014】

（６）前記第 2 液が、硬化剤として、さらに、アルコキシシリル基縮合触媒を含有する上記（５）に記載の硬化性樹脂組成物。

【0015】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の硬化性樹脂組成物（以下、単に「本発明の組成物」という。）は、1分子内にイソシアネート基とアルコキシシリル基とを有し重量平均分子量が500以上であるシリル基変性ウレタンプレポリマーを含有する第1液と、硬化剤を含む第2液とからなる二液型の硬化性樹脂組成物であり、好ましくは、該第1液がさらにエポキシ樹脂を含有し、また、該第2液がポリアミン化合物、より好ましくはさらにアルコキシシリル基縮合触媒を含有する二液型の硬化性樹脂組成物である。

【0016】

本発明の組成物に用いる樹脂成分は、1分子内にイソシアネート基とアルコキシシリル基とを有するシリル基変性ウレタンプレポリマーであって、その重量平均分子量が500以上である。

該シリル基変性ウレタンプレポリマーを用いると、十分な可使用時間を確保でき、かつ、硬化性、特に深部硬化性に優れる硬化性樹脂組成物とすることができる。

イソシアネート基とアルコキシシリル基の存在比は、1分子内に平均してそれぞれ1つずつあれば特に限定されないが、後述する、ポリイソシアネート化合物とシラン化合物との反応比により得られる存在比であるのが好ましい。

該存在比を適宜変更することにより、可使用時間と硬化性のバランスを任意に調整できる。

該ウレタンプレポリマーの分子量は、500以上であり、800以上が好ましく、1000以上が特に好ましい。該分子量が500未満であると硬化物のモジュラスが高くなり、該硬化物の柔軟性が失われる場合がある。

【0017】

該シリル基変性ウレタンプレポリマーは、そのイソシアネート基が2級または3級の炭素原子に結合しているのが好ましい。

該イソシアネート基が2級または3級の炭素原子に結合していれば、該イソシ

アネート基の活性が抑えられ、第1液の貯蔵安定性が向上する。また、長期保存後に後述する第2液と混合して用いても組成物としての優れた硬化性を維持できる。特にこれらの特性に優れるため、イソシアネート基が3級の炭素原子に結合しているのが好ましい。

【0018】

該シリル基変性ウレタンプレポリマーのアルコキシシリル基は、特に限定されず、アルコキシ基を少なくとも1つ有するシリル基であればよい。

アルコキシシリル基のケイ素原子に結合するアルコキシ基は、特に限定されないが、該シリル基の加水分解反応が速やかに進行する点でメトキシ基、エトキシ基またはプロポキシ基が好適に挙げられる。アルコキシシリル基のケイ素原子に結合するアルコキシ基以外の基は、特に限定されず、例えば、水素原子またはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等の炭素数が20以下である、アルキル基、アルケニル基もしくはアリールアルキル基が好適に挙げられる。

【0019】

このようなアルコキシシリル基として、具体的には、例えば、メチルジメトキシシリル基、ジメチルメトキシシリル基、トリメトキシシリル基、エチルジエトキシシリル基、ジエチルエトキシシリル基、トリエトキシシリル基、トリス（2-メトキシエトキシ）シリル基、エチルジメトキシシリル基、メチルジエトキシシリル基等が挙げられる。

中でも、アルコキシシリル基が架橋した後の硬化物の物性に優れる点で、アルコキシシリル基中のアルコキシ基は2つ以上有するものが好ましく、例えば、メチルジメトキシシリル基、トリメトキシシリル基、エチルジエトキシシリル基、トリエトキシシリル基、トリス（2-メトキシエトキシ）シリル基等が好適に挙げられる。

【0020】

該シリル基変性ウレタンプレポリマーは、上記したものであれば、それら以外の官能基（上記イソシアネート基とアルコキシシリル基とを結合する結合基）、物性等は特に限定されない。

【0021】

該シリル基変性ウレタンプレポリマーの製造法は、特に限定されないが、分子内に2個以上のイソシアネート基を有するポリイソシアネート化合物と；分子内に1級または2級のアミノ基とアルコキシシリル基を有するシラン化合物とを反応させる方法が好ましい。該反応により得られるものであれば、後述するように、あらかじめ該反応性生物を調製しなくても、第1液の調製と同時に行うことができる。

【0022】

上記反応に用いられる、分子内に2個以上のイソシアネート基を有するポリイソシアネート化合物は、単量体でもよく、該単量体と活性水素を有する化合物を反応させて得られるウレタンプレポリマー（本発明において、単に「プレポリマー」という。）であってもよい。

ポリイソシアネート化合物の単量体として、例えば、一般的にウレタンプレポリマーの製造に用いられるポリイソシアネートが挙げられる。より具体的には、例えば、エチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート（HDI）、H₆ XDI（水添XDI）、ノルボルナンジイソシアネート（NBDI）等の1級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート；H₁₂MDI（水添MDI）等の2級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート；イソホロンジイソシアネート（IPDI）、リジンジイソシアネート、リジントリイソシアネート等の1級炭素原子および2級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート；テトラメチルキシリレンジイソシアネート（TMXDI）等の3級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート；2,4-トリレンジイソシアネート（2,4-TDI）、2,6-トリレンジイソシアネート（2,6-TDI）、4,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート（4,4'-MDI）、2,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート（2,4'-MDI）、p-フェニレンジイソシアネート、ポリメチレンポリフェニレンポリイソシアネート、キシリレンジイソシアネート（XDI）、1,5-ナフタレンジイソシアネート等の芳香環を構成する炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート等が挙げられる。

【0023】

また、上記各ポリイソシアネートのカルボジイミド変性ポリイソシアネート、これらのイソシアヌレート変性ポリイソシアネートまたはこれらのビウレット変性ポリイソシアネート等も挙げられる。

さらに、立体障害の大きなイソシアネート基を少なくとも1個有するイソシアネート化合物を用いることもできる。具体的には、三井サイテック社製のサイセン（トリイソシアネート化合物）等が好ましく挙げられる。

この中でも、H₁₂MDI（水添MDI）等の2級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート；イソホロンジイソシアネート（IPDI）、リジンジイソシアネート、リジントリイソシアネート等の1級炭素原子および2級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート；テトラメチルキシリレンジイソシアネート（TMXDI）等の3級炭素原子に結合したイソシアネート基を有するポリイソシアネート化合物であるのが好ましく、テトラメチルキシリレンジイソシアネートであるのが特に好ましい。該イソシアネート基の活性が抑えられ、第1液の貯蔵安定性が向上する。また、長期保存後に後述する第2液と混合して用いても組成物としての優れた硬化性を維持できる。

【0024】

プレポリマーとしては、通常用いられる活性水素を有する化合物と上記ポリイソシアネート化合物の単量体との反応により得られるウレタンプレポリマーが挙げられる。

該活性水素を有する化合物としては、ポリエーテルポリオール、ポリエステルポリオールその他のポリオールおよびこれらの混合ポリオール等が好適に挙げられる。

【0025】

ポリエーテルポリオールは、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、4, 4'-ジヒドロキシフェニルプロパン、4, 4'-ジヒドロキシフェニルメタン、グリセリン、1, 1, 1-トリメチロールプロパン、1, 2, 5-ヘキサントリオール、ペンタエリスリトール等の多価ア

ルコールの1種または2種以上に、プロピレンオキサイド、エチレンオキサイド、ブチレンオキサイド、スチレンオキサイド等の1種または2種以上を付加して得られるポリエーテルポリオールが挙げられる。具体的には、ポリオキシプロピレングリコール、ポリオキシエチレングリコール、ポリオキシプロピレントリオール、テトラヒドロフランの開環重合によって得られるポリテトラメチレングリコール等が挙げられる。

【0026】

ポリエステルポリオールは、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、ペンタンジオール、ヘキサジオール、シクロヘキサジメタノール、グリセリン、1, 1, 1-トリメチロールプロパンその他の低分子ポリオールの1種または2種以上と、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、セバシン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ダイマー酸その他の低分子カルボン酸やオリゴマー酸の1種または2種以上との縮合重合体；プロピオンラクトン、バレロラクトン、カプロラクトン等の開環重合体が挙げられる。

【0027】

その他のポリオールとしては、ポリマーポリオール；ポリカーボネートポリオール；ポリブタジエンポリオール；水素添加されたポリブタジエンポリオール；アクリルポリオール；エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、4, 4'-ジヒドロキシフェニルプロパン、4, 4'-ジヒドロキシフェニルメタン、グリセリン、1, 1, 1-トリメチロールプロパン（TMP）、1, 2, 5-ヘキサントリオール、ペンタエリスリトール等の低分子量多価ポリオールが挙げられる。

【0028】

これらのなかでも、硬化後の物性が特に優れ、入手も容易であることから、数平均分子量500～15000のポリエーテルポリオールが好ましい。

これらのポリオールは、1種単独でも2種以上を組み合わせて用いることもできる。

【0029】

上記プレポリマーは、活性水素を有する化合物と過剰のポリイソシアネート化合物とを反応させることにより得られる。活性水素を有する化合物とポリイソシアネート化合物との混合比は、活性水素を有する化合物中の活性水素に対するポリイソシアネート化合物中のイソシアネート基の当量比が1.3～2.5であるのが好ましく、1.7～2.3であるのがより好ましい。この範囲であると、プレポリマーの粘度が適度であり、加工性に優れ取り扱い性にすぐれる。

【0030】

上記プレポリマーは、通常のウレタンプレポリマーの製造方法を用いて製造することができる。例えば、上述の量比の活性水素を有する化合物とポリイソシアネートを、常圧下、50～100℃で加熱攪拌することにより得られる。必要に応じて、有機スズ化合物、有機ビスマス、アミン等のウレタン化触媒を用いてもよい。

上記プレポリマーは、市販品を用いることもできる。

これらのプレポリマーは、1種単独でも2種以上を組み合わせて用いることもできる。

【0031】

本発明に用いるポリイソシアネート化合物としては、上記した中でもプレポリマーが好ましく、具体的には、IPDIまたはTMXDIと上記ポリオールを、該ポリオールの水酸基に対する該IPDIまたはTMXDIのイソシアネート基の当量比(NCO/OH)が1.7～2.3で反応させて得られるウレタンプレポリマーが好ましい。

【0032】

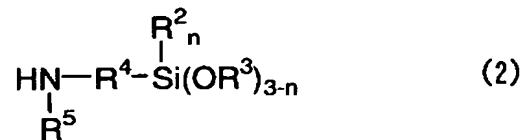
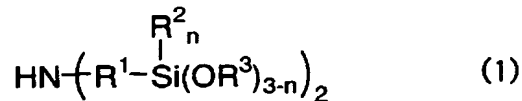
上記した分子内に1級または2級のアミノ基とアルコキシシリル基を有するシラン化合物は、特に限定されず、該アルコキシシリル基は、上記説明したアルコキシシリル基と基本的に同様である。またアミノ基は1級または2級であれば特に限定されない。該アルコキシシリル基およびアミノ基以外も特に限定されず、シラン化合物は単量体であっても、高分子化合物であってもよい。入手容易である点で、単量体が好ましい。

【0033】

単量体のシラン化合物としては、アミノ基と上記したシリル基を有すれば特に限定されないが、下記一般式(1)で表される構造または下記一般式(2)で表される構造を有する化合物であるのが好ましい。

【0034】

【化1】



(式中、 R^1 は炭素数1～12の分岐していてもよいアルキレン基であり、 R^2 および R^3 はそれぞれ炭素数1～8の分岐していてもよいアルキル基であり同一でも異なってもよく、 R^4 は炭素数1～12の分岐していてもよいアルキレン基であり、 R^5 は水素原子、アミノ基を有していてもよい炭素数1～8の直鎖または分岐のアルキル基、アミノ基を有していてもよい炭素数7～18の直鎖または分岐のアラルキル基あるいはアミノ基を有していてもよい炭素数6～18のアリール基であり、 n は0～2の整数である。)

【0035】

ここで、一般式(1)中、 R^1 の炭素数1～12の分岐していてもよいアルキレン基は、例えば、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、オクタメチレン基、デカメチレン基、ドデカメチレン基、3,3-ジメチルブチレン基等が挙げられ、入手が容易で接着性が優れる点からトリメチレン基、3,3-ジメチルブチレン基(3,3-ジメチルー1,4-ブチレン基)がより好ましい。

R^2 および R^3 の炭素数1～8の分岐していてもよいアルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 n -ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、 $tert$ -ペンチル基、1-メチルブチル基、2-メチルブ

チル基、1, 2-ジメチルプロピル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基等が挙げられ、これらの基が二重結合または三重結合を含んでいてもよい。この中でも、メチル基、エチル基が好ましい。なお、 R^2 および R^3 は同一であっても異なってもよい。

n は、0 または 1 であるのが好ましい。

【0036】

上記一般式 (1) で表される化合物として、例えば、N, N-ビス [(3-トリメトキシシリル) プロピル] アミン、N, N-ビス [(3-トリエトキシシリル) プロピル] アミン、N, N-ビス [(3-トリプロポキシシリル) プロピル] アミン (以上、日本ユニカー社製) 等が挙げられる。

【0037】

また、シラン化合物としては、上記した一般式 (1) で表される化合物の他に、上記一般式 (2) で表されるシラン化合物も好ましい。

【0038】

一般式 (2) 中、 R^2 および R^3 ならびに n は上記一般式 (1) で説明したのと基本的に同様である。

R^4 の炭素数 1 ~ 12 の分岐していてもよいアルキレン基は、上記一般式 (1) のアルキレン基 R^1 で例示したアルキレン基のいずれかであるのが好ましい。より好ましくは一般式 (1) で例示した炭素数 2 ~ 6 の分岐していてもよいアルキレン基である。

【0039】

R^5 が水素原子である、上記一般式 (2) で表される化合物として、具体的には、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジエトキシシラン、4-アミノ-3, 3-ジメチルブチルトリメトキシシラン (以上、日本ユニカー社製) 等が挙げられる。

【0040】

R^5 のアミノ基を有していてもよい炭素数 1 ~ 8 の直鎖または分岐のアルキル基としては、上記一般式 (1) の R^2 および R^3 で例示したアルキル基、該アル

キル基のアミノ基置換体等を挙げることができる。

例えば、 R^2 および R^3 で例示したアルキル基、アミノメチル基、アミノエチル基、アミノプロピル基、アミノイソプロピル基、アミノブチル基、アミノヘキシル基等のアミノ基置換体等を挙げることができる。この中でも、炭素数 2～4 の直鎖または分岐のアルキル基、あるいは、アミノメチル基、アミノエチル基、アミノプロピル基等のアミノ基置換体が好ましい。

R^5 がアミノ基を有していてもよい炭素数 1～8 の直鎖または分岐のアルキル基である、上記一般式 (2) で表される化合物として、具体的には、例えば、3-(n-ブチルアミノ)プロピルトリメトキシシラン (Dynasilan 1189 (デグサヒュルス社製))、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。

【0041】

R^5 のアミノ基を有していてもよい炭素数 7～18 の直鎖または分岐のアラルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基等を挙げることができる。

【0042】

R^5 のアミノ基を有していてもよい炭素数 6～18 のアリール基としては、フェニル基、メチルフェニル基 (トルイル基)、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基等を挙げることができる。また、アリール基の置換基としては、上記したアルキル基、アミノ基の他に、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子からなる基等が挙げられる。これらの置換基は 1 または 2 以上を有してもよく、それらの置換位置も限定されない。

【0043】

R^5 がアミノ基を有していてもよい炭素数 6～18 のアリール基である、上記一般式 (2) で表される化合物として、具体的には、例えば、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン (日本ユニカー社製) 等が挙げられる。

【0044】

上記シラン化合物は 1 種を用いてもよく、2 種以上を併用して用いてもよい。

【0045】

これらのうちでも、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N, N-ビス [(3-トリメトキシシリル) プロピル] アミン、3-ブチルアミノプロピルトリメトキシシラン、4-アミノ-3, 3-ジメチルブチルトリメトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシランが好ましい。

【0046】

上記ポリイソシアネート化合物と上記シラン化合物との反応は、上記第1液の調製と同時に行うことができるが、あらかじめ調製してもよい。

その場合、両化合物をトルエン等の溶媒中、または無溶媒で混合し、約5分～10時間攪拌して行われる。反応温度は常温で行うのが好ましい。この際、触媒は特に必要ではないが、有機スズ、有機チタン、有機ビスマス等の有機金属触媒の存在下で反応させることもできる。この反応におけるポリイソシアネート化合物とシラン化合物の反応比は、後述する。

【0047】

このようにして得られるシリル変性ウレタンプレポリマーとして、例えば、上記した好ましいポリイソシアネート化合物のいずれかと、上記した好ましいシラン化合物のいずれかとを付加させて得られる化合物が挙げられる。

具体的には、例えば、IPDIまたはTMXDIと上記ポリオールを、該ポリオールの水酸基に対する該IPDIまたはTMXDIのイソシアネート基の当量比(NCO/OH)が1.7～2.3で反応させて得られるウレタンプレポリマーと、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N, N-ビス [(3-トリメトキシシリル) プロピル] アミン、3-ブチルアミノプロピルトリメトキシシラン、4-アミノ-3, 3-ジメチルブチルトリメトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシランからなる群から選択される

1 種以上のシラン化合物とを付加させて得られるシリル変性ウレタンプレポリマーが好適に挙げられる。

【0048】

上記ポリイソシアネート化合物とシラン化合物との反応比は、特に限定されないが、シラン化合物のアミノ基（NH）に対する、ポリイソシアネート化合物のイソシアネート基（NCO）の当量比（NCO/NH）が、100/5～100/95であるのが好ましく、100/10～100/90であるのがより好ましく、100/15～100/60であるのがより好ましい。

該反応比が100/5未満であると組成物としたときの可使時間が確保できなくなる場合がある。一方、上記反応比の上限は特に限定されないが、アルコキシシラン化合物が高価でありコストが高くなる点で、100/95以下であるのが好ましい。該反応比であれば、イソシアネート基とアルコキシシリル基をそれぞれ1分子内に平均して1つ以上有し、十分な可使時間を確保でき、かつ、硬化性、特に深部硬化性に優れる硬化性樹脂組成物とすることができる。

【0049】

本発明の組成物は第1液にエポキシ樹脂を含有するのが好ましい。これにより、組成物としたときの可使時間をさらに十分に確保でき、また硬化物の機械的特性（強度等）、接着性、耐熱性等を向上できる。

【0050】

該エポキシ樹脂は、特に限定されず、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ヘキサヒドロビスフェノールA、テトラメチルビスフェノールA、ピロカテコール、レソルシノール、クレゾールノボラック、テトラブロモビスフェノールA、トリヒドロキシビフェニル、ビスレソルシノール、ビスフェノールヘキサフルオロアセトン、テトラメチルビスフェノールF、ビキシレノール等の多価フェノールとエピクロルヒドリンとの反応によって得られるグリシジルエーテル型；グリセリン、ネオペンチルグリール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、ヘキシレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等の脂肪族多価アルコールとエピクロルヒドリンとの反応によって得られるポリグリシジルエーテル型；p-オ

キシ安息香酸、 β -オキシナフトエ酸等のヒドロキシカルボン酸とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるグリシジルエーテルエステル型；フタル酸、メチルフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、テトラヒドロフタル酸、ヘキサヒドロフタル酸、エンドメチレンテトラヒドロフタル酸、エンドメチレンヘキサヒドロフタル酸、トリメリット酸、重合脂肪酸等のポリカルボン酸から誘導されるポリグリシジルエステル型；アミノフェノール、アミノアルキルフェノール等から誘導されるグリシジルアミノグリシジルエーテル型；アミノ安息香酸から誘導されるグリシジルアミノグリシジルエステル型；アニリン、トルイジン、トリブロムアニリン、キシリレンジアミン、ジアミノシクロヘキサン、ビスアミノメチルシクロヘキサン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン等から誘導されるグリシジルアミン型；さらにエポキシ化ポリオレフィン、グリシジルヒダントイン、グリシジルアルキルヒダントイン、トリグリシジルシアヌレート等；ブチルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、アルキルフェニルグリシジルエーテル、安息香酸グリシジルエステル、スチレンオキサイド等のモノエポキシ化合物等が挙げられ、これらの1種または2種以上の混合物を用いることができる。

【0051】

この中でも、ビスフェノールA、ビスフェノールF型エポキシ樹脂が、入手の容易さおよび硬化物の性質（性能）のバランスが良好であることから好ましい。

該エポキシ樹脂は市販品を用いてもよく製造してもよい。製造条件は特に限定されず、通常用いられる条件で行うことができる。

【0052】

本発明の組成物の第2液の硬化剤として好ましく含有されるポリアミン化合物は、分子内にアミノ基を2つ以上有する化合物であれば、特に限定されない。

本発明の組成物は、上記シリル基変性ウレタンプレポリマーを含有するため、ポリアミン化合物を含有させても、十分な可使時間を確保でき、かつ、硬化性、特に深部硬化性に優れる硬化性樹脂組成物とすることができる。

ポリアミン化合物の中でも、脂肪族1級もしくは2級アミノ基または芳香族アミノ基を有する化合物が好ましく、脂肪族1級または2級アミノ基を有する化合

物がより好ましい。該アミノ基の反応性が好適であり組成物の硬化性に優れる。

また、ポリアミン化合物は、低分子ポリアミン化合物（単量体）と高分子ポリアミン化合物の混合物を用いるのが、組成物の硬化性をより向上できるため好ましい。

【0053】

低分子ポリアミン化合物としては、例えば、エチレンジアミン、1, 2-または1, 3-プロパンジアミン、1, 4-ブタンジアミン、1, 5-ペンタンジアミン、1, 6-ヘキサンジアミン、1, 7-ヘプタンジアミン、1, 8-オクタンジアミン、1, 9-ノナンジアミン、1, 10-デカンジアミン、1, 12-ドデカンジアミン、1, 14-テトラデカンジアミン、1, 16-ヘキサデカンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、ヘキサメチレンジアミン、トリメチルヘキサメチレンジアミン、イミノビスプロピルアミン、メチルイミノビスプロピルアミン、1, 5-ジアミノ-2-メチルペンタン（デュポン・ジャパン社製「MPMD」）、イソホロンジアミン、1, 3-ビスアミノメチルシクロヘキサン（三菱ガス化学社製「1, 3BAC」）、1-シクロヘキシルアミノ-3-アミノプロパン、3-アミノメチル-3, 3, 5-トリメチル-シクロヘキシルアミン、ノルボルナン骨格のジメチレンアミン（三井化学社製「NBDA」）等の脂肪族ジアミン；メタキシリレンジアミン（MXDA）、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2, 4'-ジアミノジフェニルメタン、3, 3'-ジアミノジフェニルメタン、3, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2, 2'-ジアミノビフェニル、3, 3'-ジアミノビフェニル、2, 4-ジアミノフェノール、2, 5-ジアミノフェノール、o-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、2, 3-トリレンジアミン、2, 4-トリレンジアミン、2, 5-トリレンジアミン、2, 6-トリレンジアミン、3, 4-トリレンジアミン等の芳香族ジアミン；各種トリアミン等のポリアミンを用いることができる。

【0054】

また、高分子ポリアミンとして、例えば、分子両末端のプロピレン分岐炭素に

アミノ基が結合したポリプロピレングリコール（プロピレン骨格のジアミン、例えば、サンテクノケミカル社製「ジェファーミンD230」、「ジェファーミンD400」等、プロピレン骨格のトリアミン、例えば、「ジェファーミンT403」等）、ポリエーテル骨格のジアミン（サンテクノケミカル社製「ジェファーミンEDR148」（エチレングリコール骨格のジアミン））等、ポリアミドアミン（三和化学社製「X2000」）、ウレタン骨格のポリアミン（例えば、大都産業社製「ダイトクラールU-4070」）等を挙げることができる。

【0055】

これらの中でも、工業的に入手容易であるため、低分子ポリアミン化合物としては、ノルボルナン骨格のジメチレンアミン、MXDA、1,3BAC、ジェファーミンシリーズが好ましく、高分子ポリアミンとしては、ウレタン骨格のポリアミン、ポリエチレングリコールもしくはポリプロピレングリコール骨格のジアミンが好ましい。

これらのポリアミンは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

ポリアミン化合物の上記混合物としては、上記の好ましい化合物を組合せて用いるのが好ましい。

【0056】

本発明の組成物の第2液の硬化剤として、硬化速度をより向上させるため、さらにアルコキシシリル基縮合触媒を含有するのが好ましい。

該触媒として、例えば、オクタン酸亜鉛、オクタン酸鉄、オクタン酸マンガン、オクタン酸スズ、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸鉄、ブタン酸スズ、カプリル酸スズ、オレイン酸スズ等のカルボン酸金属塩；ジブチルスズジアセテート、ジブチルスズジオクテート、ジブチルスズジラウレート、ジブチルスズジオレエート、ジオクチルスズジラウレート、ジフェニルスズジアセテート、酸化ジブチルスズ、酸化ジブチルスズとフタル酸エステルとの反応生成物、ジブチルスズジメトキシド、ジブチル（トリエトキシシロキシ）スズ等の有機スズ化合物；ジブチルスズジアセチルアセトナート等のスズキレート化合物；テトラエトキシチタン、テトラプロポキシチタン、テトラブトキシチタン、テトラ-2-エチルヘキシルオキシチタン、テトライソプロペニルオキシチタン等のチタン酸エステル；ジイ

ソプロポキシチタンビス（アセチルアセトナート）、ジイソプロポキシチタンビス（エチルアセトアセテート）、1, 3-プロパンジオキシチタンビス（アセチルアセトナート）、1, 3-プロパンジオキシチタンビス（エチルアセトアセテート）、チタントリス（アセチルアセトナート）等のチタンキレート化合物；テトライソプロポキシジルコニウム、テトラブトキシジルコニウム、トリブトキシジルコニウムステアレート等のジルコニウムアルコキシド；ジルコニウムテトラ（アセチルアセトナート）等のジルコニウムキレート化合物；トリエトキシアルミニウム、トリプロポキシアルミニウム、トリブトキシアルミニウム等のアルミニウムアルコキシド；ジイソプロポキシアルミニウム（エチルアセトアセテート）、アルミニウムトリス（アセチルアセトナート）、アルミニウムトリス（エチルアセトアセテート）等のアルミニウムキレート化合物；トリエチレンジアミン、モルホリン、N-メチルホルホルン、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1, 8-ジアザビシクロ〔5. 4. 0〕-7-ウンデセン等の環状アミン；2, 4, 6-トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール等のアミノフェノール化合物等のアミン化合物；ならびに；過剰のポリアミンとエポキシ化合物との反応生成物等が例示される。その他、シリル基の加水分解および／または縮合反応に有効な公知の化合物を用いることができる。また、該触媒は、単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

【0057】

これらのうち、保存および取扱い中に揮発しにくいことから、金属化合物が好ましく、中でも微量の配合で優れた触媒能が得られることから、有機スズ化合物、スズキレート化合物およびチタン酸エステルが好ましい。

【0058】

本発明の組成物は、上記したシリル基変性ウレタンプレポリマーを含む第1液と上記した硬化剤を含む第2液とからなる。

第1液は、シリル基変性ウレタンプレポリマー100質量部に対して、エポキシ樹脂を100質量部以下含有するのが好ましく、0.1～80質量部含有するのが好ましく、0.5～50質量部含有するのが好ましい。エポキシ樹脂を含有させることにより、組成物としたときの可使時間をさらに十分に確保でき、また

硬化物の機械的特性（強度等）、接着性、耐熱性等を向上できる。

【0059】

また、第1液に含まれるシリル基変性ウレタンプレポリマーの調製は該第1液の調製と同時にできる。この場合、あらかじめ調製するよりも、製造作業が容易になる。このときのポリイソシアネート化合物と上記シラン化合物との反応比は、上記したシリル変性ウレタンプレポリマー調製時の当量比であるのが好ましい。

【0060】

第2液に含まれる硬化剤の含量は特に限定されないが、第1液に含まれる樹脂成分に対して以下の割合であることが好ましい。

ポリアミン化合物の含量は、第1液のシリル基変性ウレタンプレポリマーに含まれるイソシアネート基（エポキシ樹脂を含む場合は該イソシアネート基とエポキシ基の合計量）に対するポリアミン化合物のアミノ基の当量比が、0.5～2.0であるのが好ましく、0.7～1.5であるのがより好ましく、0.9～1.1であるのが特に好ましい。この範囲であると、硬化物の表面タックの発生を抑えることができ、硬化後の物性も良好である。

アルコキシシリル基縮合触媒は、第1液のシリル基変性ウレタンプレポリマー100質量部に対して、0.01～5質量部であるのが好ましく、0.05～4質量部であるのがより好ましく、0.1～3質量部であるのが特に好ましい。

【0061】

本発明の組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、第1液および第2液の少なくとも一方に、さらに、補強剤（充填剤）、可塑剤、シランカップリング剤、顔料、染料、老化防止剤、酸化防止剤、帯電防止剤、難燃剤、接着性付与剤、分散剤、溶剤、揺変成付与剤、紫外線吸収剤、界面活性剤（レベリング剤を含む）、脱水剤、防錆剤等の各種添加剤、樹脂成分等を含含有していてもよい。

これらの各種添加剤、樹脂成分等は、一般に使用されるものを特に制限されずに用いることができる。

【0062】

本発明の組成物を製造する方法は、特に限定されないが、ポリイソシアネート

化合物、シラン化合物、所望によりエポキシ樹脂および各種添加剤等を減圧下あるいは窒素等の不活性ガス雰囲気下で、混合ミキサー等の攪拌装置を用いて十分に混練し、均一に分散させて得られる第1液と、硬化剤と所望により各種添加剤等を同様に混合して得られる第2液とを、使用時に十分混練させる方法が一般的である。

なお、第1液のポリイソシアネート化合物とシラン化合物の代わりに、シリル基変性ウレタンプレポリマーをあらかじめ上記した方法で調製して用いてもよい。このときのポリイソシアネート化合物とシラン化合物との反応比は上記と同様である。

【0063】

本発明の組成物は、上記特性を有するため、十分な可使時間と優れた硬化性が要求される接着剤、シーリング剤、コーティング剤、塗料等に好適に用いられる。具体的には、建築、自動車、土木の分野で用いられる接着剤、シーリング剤、コーティング剤、塗料等に好適に用いられる。

【0064】

本発明の組成物は、シリル基変性ウレタンプレポリマーを含有することにより、硬化剤と残存するイソシアネート基の反応による硬化性を損なわず、また十分な可使時間を確保できる。

該シリル基変性ウレタンプレポリマーのイソシアネート基が2級または3級の炭素原子に結合したものは、該イソシアネート基の活性が低く、第1液の貯蔵安定性が向上する。また、長期保存後に後述する第2液と混合して用いても組成物としての優れた硬化性を維持できる。

第1液にエポキシ樹脂を含有することにより、組成物としたときの可使時間をさらに十分に確保でき、また硬化物の機械的特性（強度等）、接着性、耐熱性等を向上できる。

【0065】

すなわち、本発明の組成物は、上記特性を有するため、十分な可使時間と優れた硬化性が要求される接着剤、シーリング剤等に好適に用いられる。

【0066】

【実施例】

以下に、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。

【0067】**＜ポリイソシアネート化合物（プレポリマー）の調製＞**

ポリエーテルポリオール（2官能性のポリプロピレングリコール、数平均分子量約3000、旭硝子社製、エクセノール3020）と、テトラメチルキシリレンジイソシアネート（三井サイテック社製）を、水酸基に対するイソシアネート基の比（NCO/OH）が2.0となる量比で、定法に従い反応させ、プレポリマー1を得た。該プレポリマー中のイソシアネート基は1.9質量%であった。

【0068】

ポリエーテルポリオール（3官能性のポリプロピレングリコール、数量平均分子量約5000、旭硝子社製、エクセノール5030）と、テトラメチルキシリレンジイソシアネート（三井サイテック社製）を、水酸基に対するイソシアネート基の比（NCO/OH）が2.0となる量比で、定法に従い反応させ、プレポリマー2を得た。該プレポリマー中のイソシアネート基は2.1質量%であった。

【0069】**＜第1液の調製＞**

上記で得たプレポリマー、以下に示すシラン化合物、エポキシ樹脂および炭酸カルシウムを、第1表に示す配合比（質量部）で、混合ミキサーに投入し、室温で窒素雰囲気下十分に混合した。

なお、第1表中のシラン化合物の含量を質量部で表しているが、シラン化合物のアミノ基（NH）に対する、プレポリマー1および2のイソシアネート基（NCO）の当量比（NCO/NH）で表すと、実施例1は100/60、実施例2は100/20、実施例3は100/20、実施例4は100/20、実施例5は100/40である。

【0070】**＜第2液の調製＞**

以下に示すポリアミン化合物、スズ触媒（アルコキシシリル基縮合触媒）、可塑剤、炭酸カルシウムおよびケチミン化合物を、第1表に示す配合比（質量部）で、混合ミキサーに投入し、室温で窒素雰囲気下十分に混合した。

【0071】

シラン化合物； γ -アミノプロピルトリメトキシシラン（日本ユニカー社製）

エポキシ樹脂；ビスフェノールA型エポキシ樹脂（EP-4100E、旭電化社製、エポキシ当量190）

ポリアミン化合物1；ノルボルナン骨格のジメチレンアミン（NBDA、三井化学社製）

ポリアミン化合物2；ウレタンアミン（ダイトクラールU-4070、大都産業社製、アミン当量1700）

スズ触媒；ジブチルスズアセテート（試薬）

炭酸カルシウム；シーレッツ200、丸尾カルシウム社製

可塑剤；ジイソノニルアジペート（DINA、三菱化学社製）

【0072】

<ケチミン化合物の合成>

ノルボルナンジアミン（NBDA）100gおよびメチルイソプロピルケトン145gを、トルエン100gとともにフラスコに入れ、生成する水を共沸により除きながら15時間反応させた後、トルエンおよび過剰のケトンを蒸留により除去して、ケチミン化合物を得た。

【0073】

<本発明の組成物の調製>

上記で得られた第1液および第2液を、混合ミキサーに投入し、室温で窒素雰囲気下十分に混合して各組成物を得た。

なお、第1表に示す第1液と第2液の混合比（質量部）は、第1液のシリル基変性ウレタンプレポリマーに含まれるイソシアネート基（エポキシ樹脂を含む場合は該イソシアネート基とエポキシ基の合計量）に対するポリアミン化合物のアミノ基の当量比で決定され、その当量比は、実施例および比較例のすべてにおいて1.0であった。

【 0 0 7 4 】

得られた各組成物について、可使時間、硬化性および深部硬化性について以下の方法により測定または評価した。

<可使時間>

得られた各組成物をそれぞれ、2 0 ℃ 5 0 % R H の条件で放置し、放置後十分に目地に施工（張り合わせ）できるまでの時間（可使時間）を測定した。

比較例 1 では、上記の組成物の調製時にゲル化し可使時間を測定できなかった。第 1 表中には「< 1 m i n」と表記した。

なお、可使時間は、組成物が用いられる用途、条件等により異なり一概には言えないが、1 時間あれば、二液型硬化性樹脂組成物として十分である。

【 0 0 7 5 】

<深部硬化性>

得られた各組成物をそれぞれ、縦 5 c m × 横 5 c m × 高さ 5 c m のポリエチレン製の枠の中に気泡が入り込まないように流し込み、上端の大気に触れている表面を平らにならして試験体とした。この試験体を 2 0 ℃ 5 5 % 湿度条件下におき、このときの時間を硬化時間を測定するための開始時間とした。硬化反応開始 2 4 時間後に、試験体をそれを覆っている枠ごとナイフで切断し、その断面について表面タックの有無を評価した。

評価は、指触で行い、断面部の表面タックがなかった場合を「○」、表面タックの存在が確認できたがその数が少なかった場合を「△」、多くの表面タックが確認できた場合を「×」とした。

【 0 0 7 6 】

<硬化性試験>

上記深部硬化性試験の試験体の表面を同様に評価した。

その結果、すべての試験体において、表面タックは認められなかった。

【0077】

【表1】

第 1 表

	実施例						比較例	
	1	2	3	4	5		1	2
第 1 液	40 20 3 シラン化合物 エポキシ樹脂 炭酸カルシウム	40 20 1 10 60	60 1 10 60	40 20 1 10 60	40 20 2 10 60		40 20 10 60	40 20 10 60
第 2 液	ポリアミン化合物 1 ポリアミン化合物 2 ケチミン化合物 スズ触媒 炭酸カルシウム 可塑剤	0.2 15 0.2 60 30	2.7 25 0.1 60 30	2.7 25 0.1 60 30	1.9 20 0.1 60 30		2.7 25 0.1 60 30	6.0 60 30
	可使時間 (hrs) 深部硬化性	3 ○	6 △	2 ○	1 ○		<1min —	>6 ×

【 0 0 7 8 】

【発明の効果】

本発明により、十分な可使時間を確保でき、かつ、硬化性、特に深部硬化性に優れる二液型の硬化性樹脂組成物を提供できる。

さらに上記特性に加え、より十分な可使時間を確保でき、かつ硬化物の機械的特性（強度等）、接着性、耐熱性等に優れる二液型の硬化性樹脂組成物を提供できる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 十分な可使時間を確保でき、かつ、硬化性、特に深部硬化性に優れた二液型硬化性樹脂組成物の提供。

【解決手段】 1 分子内にイソシアネート基とアルコキシシリル基とを有し、重量平均分子量が 5 0 0 以上であるシリル基変性ウレタンプレポリマーを含有する第 1 液と、硬化剤を含む第 2 液とからなる二液型の硬化性樹脂組成物。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 3 - 0 0 0 4 5 9

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 6 7 1 4]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区新橋 5 丁目 3 6 番 1 1 号

氏 名

横浜ゴム株式会社